

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
B 2 2 F 3/02		B 2 2 F 3/02	L 4 K 0 1 8
1/02		1/02	G 5 E 0 4 1
H 0 1 F 1/26		H 0 1 F 1/26	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2001-525727 (P2001-525727)	(71) 出願人	ローベルト ボツシユ ゲゼルシャフト ミット ベシユレンクテル ハフツング ROBERT BOSCH GMBH ドイツ連邦共和国 シュツツガルト (番地なし)
(86) (22) 出願日	平成12年9月6日 (2000.9.6)	(72) 発明者	ヴィルフリート アイヒエレ ドイツ連邦共和国 ヴィネンデン シュッ テルエッカー 12
(85) 翻訳文提出日	平成13年5月21日 (2001.5.21)	(72) 発明者	ハンスーペーター コッホ ドイツ連邦共和国 シュツツガルト シ ュツツエンビュールシュトラーセ 15
(86) 国際出願番号	PCT/DE 0 0 / 0 3 0 5 4	(74) 代理人	弁理士 矢野 敏雄 (外4名)
(87) 国際公開番号	WO 0 1 / 0 2 2 4 4 8		
(87) 国際公開日	平成13年3月29日 (2001.3.29)		
(31) 優先権主張番号	1 9 9 4 5 6 1 9 . 4		
(32) 優先日	平成11年9月23日 (1999.9.23)		
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		
(81) 指定国	EP (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), CN, JP, US		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 プレス成形材料及びプレス成形材料を用いた軟磁性複合材料の製造方法

(57) 【要約】

軟磁性特性を有する出発粉末、熱可塑性化合物及び可塑剤を含有するプレス成形材料、特に軟磁性複合材料の製造のためのプレス成形材料が提案される。溶剤は特にステアリン酸である。さらに、軟磁性複合材料の製造のためにこの種のプレス成形材料を使用することが提案され、その際、この製造は次の方法工程を有する：成形材料の準備、熱可塑性化合物の溶融温度を下回る温度でのプレス成形材料のプレス成形、熱可塑性化合物の溶融温度より下でのプレス成形された成形材料の第1の温度処理及び熱可塑性化合物の溶融温度より上でのプレス成形された成形材料の第2の温度処理。提案された軟磁性複合材料は、特に急速なレギュレータ及びアクチュエータ用の熱形状安定性、耐腐食性及び耐燃料性の軟磁性構成要素の製造のために特に適している。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 プレス成形材料、特に軟磁性特性を有する出発粉末及び熱可塑性化合物を有する軟磁性複合材料を製造するためのプレス成形材料において、前記のプレス成形材料に滑剤を添加することを特徴とするプレス成形材料。

【請求項 2】 滑剤が易揮発性溶剤中の溶液としてプレス成形材料に添加されているか、又は滑剤が平均粒度 $1\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 、特に $10\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ の粉末としてプレス成形材料に添加されている、請求項 1 記載のプレス成形材料。

【請求項 3】 滑剤が同時に離型剤である、請求項 1 記載のプレス成形材料。

【請求項 4】 滑剤がステアリン酸、特に超微粉碎されたステアリン酸である、請求項 1、2 又は 3 記載のプレス成形材料。

【請求項 5】 軟磁性特性を有する出発粉末が特にリン酸塩処理された鉄粉末、鉄-ニッケル粉末、鉄-ケイ素粉末又は鉄-コバルト粉末である、請求項 1 記載のプレス成形材料。

【請求項 6】 熱可塑性化合物が溶剤中の溶液としてプレス成形材料に添加されているか、又は熱可塑性化合物が粉末としてプレス成形材料に添加されている、請求項 1 記載のプレス成形材料。

【請求項 7】 粉末状の熱可塑性化合物が $1\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 、特に $5\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ の平均粒度を有する、請求項 6 記載のプレス成形材料。

【請求項 8】 熱可塑性化合物がポリフェニレンスルフィドである、請求項 1 から 7 のいずれか 1 項記載のプレス成形材料。

【請求項 9】 熱可塑性化合物が 0.2 質量%～10 質量%、特に 0.3～1.5 質量%の割合でプレス成形材料に添加されている、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項記載のプレス成形材料。

【請求項 10】 滑剤が 0.05 質量%～1 質量%、特に 0.1～0.3 質量%の割合でプレス成形材料に添加されている、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項記載のプレス成形材料。

【請求項 11】 プレス成形材料が流動性である、請求項 1 から 10 までの

いずれか 1 項記載のプレス成形材料。

【請求項 12】 次の方法工程：

- a.) プレス成形材料を準備し、
 - b.) 熱可塑性化合物の熔融温度を下回る温度でプレス成形材料をプレス成形し、
 - c.) プレス成形されたプレス成形材料を熱可塑性化合物の熔融温度より下で第 1 の熱処理を行い、
 - d.) プレス成形されたプレス成形材料を熱可塑性化合物の熔融温度より上での第 2 の熱処理を行う
- を有する、請求項 1 から 11 までのいずれか 1 項記載のプレス成形材料を用いる軟磁性複合材料の製造方法。

【請求項 13】 プレス成形材料のプレス成形をプレス金型中で、特に雌型中で、一軸でプレス成形することにより行う、請求項 12 記載の方法。

【請求項 14】 プレス成形材料のプレス成形を 50℃～90℃、特に 70℃の温度で行う、請求項 12 又は 13 記載の方法。

【請求項 15】 プレス成形材料のプレス成形を高めた温度のもとでこの温度にプレス金型を予熱することにより行う、請求項 13 又は 14 記載の方法。

【請求項 16】 第 1 の温度処理を 200℃～270℃、特に 260℃の温度で 20 分～4 時間にわたり行い、第 2 の温度処理を 285℃～310℃の温度で 5 分～1 時間にわたり行う、請求項 12 から 15 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 17】 第 1 の温度処理及び／又は第 2 の温度処理を不活性ガス雰囲気下で、特に窒素雰囲気下で行う、請求項 12 から 16 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 18】 滑剤を第 1 の熱処理の間に少なくとも十分に残留物が残らないように熱分解する及び／又は少なくとも十分に残留物が残らないように蒸発させる、請求項 12 から 17 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 19】 滑剤及びその分解生成物が、熱可塑性化合物に対して及び軟磁性特性を有する出発粉末に対して化学的に少なくとも十分に不活性である、

請求項 12 から 18 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 20】 プレス成形材料の準備が、軟磁性特性を有する出発粉末と、粉末状の熱可塑性化合物との混合であるか又は軟磁性特性を有する出発粉末の溶剤中に溶かした熱可塑性化合物による被覆である、請求項 12 から 19 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 21】 プレス成形材料の準備が、軟磁性特性を有する出発粉末と、粉末状の滑剤との混合であるか又は溶剤中に溶かした滑剤の成形材料中への導入である、請求項 12 から 20 までのいずれか 1 項記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は、独立形式請求項の前提部に記載されたプレス成形材料及びこの種のプレス成形材料を用いた軟磁性複合材料の製造方法に関する。

【0002】

従来の技術

軟磁性複合材料は、特に電気機械における温度安定性、耐腐食性及び耐溶剤性の磁性部材の製造のために必要となる。この場合、この軟磁性複合材料並びにその材料を用いて製造された部材は特定の特性を必要とする：この材料は高い透磁率、高い磁気飽和、わずかな保磁力及びできる限り高い比電気抵抗を有するべきである。前記の磁性特性と高い比電気抵抗との組合せは、わずかな渦電流損で高い回路力学 (Schaltdynamik) を生じる、つまり、この種の部材の磁気飽和及び消磁は短時間内で行われる。

【0003】

ドイツ国特許出願公開第 1 9 7 3 5 2 7 1 号明細書には軟磁性の成形可能な複合材料及びその製造方法が既に提案されており、この場合、軟磁性特性を有する粉末は熱可塑性化合物で被覆されており、引き続き成形体にプレス成形されている。その後で、この成形体もしくは成形されたプレス成形材料を保護ガス下で、熱可塑性化合物の融点を上回る温度で熱処理する。

【0004】

さらに、合金でない鉄粉末又は合金の鉄粉末を熱硬化性樹脂、例えばエポキシ樹脂又はフェノール樹脂と共に軸方向にプレス成形することは既に公知である。

【0005】

本発明の利点

本発明によるプレス成形材料及び本発明によるプレス成形材料を用いた軟磁性複合材料の製造方法は先行技術と比べて、プレス金型、例えば雌型中でプレス成形材料をプレス成形する際に今まで必要な温度を低下させ、かつ同時にプレス成形する前にプレス成形材料の予熱を必要としないという利点を有する。プレス成形材料の改善された滑り挙動は、さらにプレス成形材料中の熱可塑性化合物の割

合を減少させることを可能にする。

【0006】

さらに、本発明によるプレス成形材料は所定のプレス成形力で高い材料密度を達成することができ、かつこの材料は比較的わずかな金型摩耗を生じる。プレス成形前のプレス成形材料の予熱が必要ないことにより、例えば軟磁性特性を有する出発粉末としての鉄粉末の不所望な酸化が生じることは回避される。

【0007】

さらに、金型温度の低下により、本発明による方法の場合、プレス金型中でのプレス加工を保護ガス下で行う必要がなくなる。

【0008】

本発明によるプレス成形材料及び本発明による方法は、最終的に、加熱プレス装置の本質的な簡素化による簡単な加工の利点並びに付形の際にわずかなエネルギー消費の利点を有する。

【0009】

本発明の有利な実施態様は、引用形式請求項に記載された方法から生じる。

【0010】

軟磁性複合材料の製造もしくはこの複合材料を使用する部材の製造は、有利にプレス成形材料に添加された熱可塑性化合物の熔融温度を下回る温度でプレス成形材料を一軸の雌型プレスにより及び引き続き段階的な熱的時効プロセスにより行われる。

【0011】

この熱的時効プロセスにおいて、有利にまず熱可塑性化合物の熔融温度を下回る温度で添加した滑剤を蒸発又は熱分解し、その後で次の温度上昇により熱可塑性化合物を熔融させる。この場合、熔融した熱可塑性化合物は出発粉末の軟磁性特性を有する粉末粒子を濡らし、それにより冷却後に粉末粒子の有効な接着を引き起こし、これが良好な機械的強度及び得られた複合材料の高い電気抵抗を生じさせる。

【0012】

軟磁性複合材料の本発明による製造方法のための出発材料としての本発明によ

るプレス成形材料は、熱可塑性化合物で表面を被覆した軟磁性粉末から又は微細な熱可塑性樹脂と乾式で混合された軟磁性粉末から出発する。

【0013】

粉末粒子を熱可塑性化合物で被覆することは、例えば溶剤中の適当な熱可塑性ポリマーの溶液を添加することにより達成することができる。

【0014】

熱可塑性化合物を軟磁性粉末と乾式で混合する場合、有利に $1\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 、特に $5\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ の平均粒度を有する粉末状の熱可塑性化合物が使用される。

【0015】

滑剤として、不活性ガス雰囲気下でのプレス成形材料の加熱の際に、二段階での熱的時効プロセスの間に、使用した熱可塑性化合物の熔融温度を下回る温度で蒸発するか又は熱的に分解しかつ揮発するが、滑剤並びに滑剤の分解生成物は熱可塑性化合物及び／又は軟磁性特性を有する出発粉末と化学的に反応しない滑剤が特に有利に使用される。

【0016】

滑剤に由来するガスの圧力のもとで複合材料から熱可塑性樹脂溶融物が追い出されるのを回避するために、更なる温度上昇により熱可塑性化合物の溶融及び軟磁性出発粉末の濡れが生じる前に、滑剤がプレス成形後に熱可塑性化合物の溶融温度を下回る温度でまず少なくともほぼ完全にプレス成形材料から除去される場合が著しく有利である。

【0017】

従って、全体として、プレス成形材料もしくはそのプレス成形材料から製造された部材の冷却の際に初めて、滑剤不含の複合材料の強度の本質的な向上が付着するポリマー架橋の形成により生じる。

【0018】

さらに、従って有利に、滑剤が得られた軟磁性複合材料の構造中に残留しかつそこで使用特性に不利な影響を及ぼすことは回避される。

【0019】

滑剤が、さらに同時に離型剤として機能するステアリン酸である場合に、プレス成形時の温度並びに熱的時効プロセスの間の温度に関して特に有利であることが判明した。このステアリン酸はさらに $1\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 、特に $10\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ の平均粒度を有する超微粉碎された粉末としてプレス成形材料に添加される。

【0020】

熱可塑性化合物として有利に多数のポリマーが適しており、この場合ポリフェニレンスルフィドを使用するのが有利である。ステアリン酸とポリフェニレンスルフィドとの組合せが特に有利である。

【0021】

その他に、例えば加工性及び取り扱いが容易であるために、本発明のプレス成形材料は流動性であるのが特に有利である。

【0022】

実施例

まず、軟磁性特性を有する出発粉末としてのABMタイプ又はSomaloy 500タイプのリン酸塩処理された鉄粉末 (Fa. Hoeganaes, Schweden社) を、熱可塑性化合物としてのポリフェニレンスルフィド粉末と混合した。ポリフェニレンスルフィド粉末は例えばVOタイプ (Fa. Philips Petroleum社) 又はFortron 0205 B4/20 (Fa. Ticona社) を使用した。さらに、この粉末混合物は滑剤及び離型剤として、平均粒度約 $30\mu\text{m}$ を有するステアリン酸を添加した。

【0023】

詳細には、滑剤のステアリン酸はプレス成形材料に $0.05\text{質量}\%\sim 1\text{質量}\%$ 、特に $0.1\text{質量}\%\sim 0.3\text{質量}\%$ の割合で添加した。

【0024】

熱可塑性化合物はプレス成形材料に $0.2\text{質量}\%\sim 10\text{質量}\%$ 、特に $0.3\sim 1.5\text{質量}\%$ の割合で添加した。

【0025】

具体的には、例えばリン酸塩処理された鉄粉末をポリフェニレンスルフィド粉末 $0.6\text{質量}\%$ 及び超微粉碎されたステアリン酸 $0.2\text{質量}\%$ と混合する。

【0026】

こうして得られた流動性のプレス成形材料は、さらに粉末の予熱を行わずに、70℃の金型温度で、雌型中で一軸プレス成形により成形して部材にした。このためにプレス金型を70℃に予熱した。

【0027】

プレス成形材料を雌型中でプレス成形した後に、次に2工程の時効プロセスが行われ、この時効プロセスは、使用した熱可塑性化合物の溶融温度より下でのプレス成形された成形材料もしくは成形された部材の第1の温度処理、及びその後の熱可塑性化合物の溶融温度より上でのプレス成形された成形材料の第2の温度処理である。

【0028】

詳細な例において、第1の温度処理は窒素雰囲気下で260℃の温度で2時間にわたり実施する。その後、第2の温度処理は285℃～300℃で30分の時間にわたり行われる。

【0029】

ステアリン酸の選択により、この滑剤は第1の温度処理の間に少なくとも十分に残留物なしに揮発することが保証される。さらに、この滑剤及びその分解生成物は使用した熱可塑性化合物のポリフェニレンスルフィド及びリン酸塩処理された鉄粉末に対して化学的に少なくとも十分に不活性であるため、この温度処理の間に滑剤とプレス成形材料の残りの成分との間に化学反応は起こらない。

【0030】

プレス成形前のプレス成形材料の加工は、一方で軟磁性特性を有する鉄粉末と粉末状の熱可塑性化合物のポリフェニレンスルフィド並びに粉末状の滑剤のステアリン酸との混合であることができる。

【0031】

しかしながら、それとは別に、まず軟磁性特性を有する鉄粉末を溶剤中に溶かした熱可塑性化合物、例えばポリフタルアミドで被覆し、次に又は同時に軟磁性特性を有する出発粉末を粉末状の滑剤と混合するか、又は溶剤中に溶かした滑剤をプレス成形材料中に導入することも同様に可能である。

【0032】

プレス金型中での本来のプレス工程の前のプレス成形材料の準備のためのその他の詳細に関して及び適当な熱可塑性化合物の詳細に関しては、ドイツ国特許出願公開第19735271号明細書を参照する。特に、熱可塑性化合物としてポリフタルアミドも使用できることが強調される。

【0033】

軟磁性特性を有する出発粉末として純粋な鉄粉末の他に、鉄－ニッケル合金、鉄－ケイ素合金及び鉄－コバルト合金も適している。

【0034】

本発明によるプレス成形材料及び前記成形材料を用いて実施した軟磁性複合材料の製造方法の利点を示すために比較試験を行い、その際、リン酸塩処理された鉄粉末を、前記の実施例と同等のポリフェニレンスルフィド粉末0.8質量%と混合した。しかしながらこのプレス成形材料には滑剤を添加しなかった。

【0035】

本発明により得られた軟磁性複合材料と比較可能な比較試料の磁氣的及び電気的特性を達成するために、この場合、まずプレス成形の前に保護ガス下での130℃への粉末の予熱を行い、このプレス成形材料をその後で140℃の金型温度でプレス成形する必要があった。その後で、1工程の貯蔵プロセスを行い、このプロセスは285℃～300℃で、1時間にわたり窒素雰囲気下での温度処理であった。

【0036】

従って、全体として滑剤の本発明による添加により、粉末の予熱を行わずかつ金型温度を明らかに減少できることが達成された。

【0037】

熱重量分析試験（TGA－分析）及び示差走査熱分析（DSC－分析）により、滑剤のステアリン酸が、第1の温度処理の間のプレス成形されたプレス成形材料の加熱により蒸発するかもしくは十分に熱的に分解及び蒸発することをさらに検出することができた。

【0038】

140℃の金型温度で製造された部材と比較して得られた部材の高められた強度は、さらに、滑剤並びにその分解生成物がポリフェニレンスルフィドとほとんど化学的に反応しないことを示した。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internet Application No.
PCT/DE 00/03054

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 H01F41/02 H01F1/26

According to International Patent Classification (IPC) into both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 H01F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

WPI Data, EPO-Internal, PAJ, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 198201 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A21, AN 1982-00897E XP002155837 & JP 56 155510 A (TOHOKU METAL IND LTD), 1 December 1981 (1981-12-01) abstract	1,5,10
A	----- EP 0 760 523 A (SIEMENS MATSUSHITA COMPONENTS) 5 March 1997 (1997-03-05) column 1, line 1 - line 6; claim 1	4,12,13
A	----- EP 0 760 523 A (SIEMENS MATSUSHITA COMPONENTS) 5 March 1997 (1997-03-05) column 1, line 1 - line 6; claim 1	1,2,6, 9-11

---/---

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex

* Special categories of cited documents:

- *A* documents defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority date(s) or which is cited to establish the publication date of another claim or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *G* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 December 2000

Date of mailing of the international search report

02/01/2001

Name and mailing address of the ISA
European Patent Office, P.O. Box 5818 Patentstein 2
NL - 2200 PH Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-2018

Authorized officer

Decanniere, L

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2002)

page 1 of 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internat	Application no
PCT/DE	00/03054

C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passage	Relevant to claim no.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 230 (E-1208), 27 May 1992 (1992-05-27) & JP 04 044304 A (SUMITOMO BAKELITE CO LTD), 14 February 1992 (1992-02-14) abstract	1,8,9
P,X	EP D 977 216 A (TDK CORP) 2 February 2000 (2000-02-02) page 5, line 10 - line 16; claims 1,3	1,3-5,10
P,X	US 6 039 784 A (LUK SYDNEY) 21 March 2000 (2000-03-21) claims 1,3,4	1,5,9,10

Form PCT/ABAX/10 (continuation of section # 1) (July 1992)

page 2 of 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

 Internat. Application No
 PCT/DE 00/03054

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 56155510 A	01-12-1981	NONE	
EP 0760523 A	05-03-1997	JP 9118561 A	06-05-1997
JP 04044304 A	14-02-1992	JP 2752775 B	18-05-1998
EP 0977216 A	02-02-2000	JP 2000049008 A	18-02-2000
		US 6149704 A	21-11-2000
US 6039784 A	21-03-2000	US 6126715 A	03-10-2000

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1999)

フロントページの続き

(72) 発明者 アンドレアス ハルツァー
ドイツ連邦共和国 シュヴィーバーディン
ゲン シェルメンブフアート 34
(72) 発明者 トルステン ボーナー
ドイツ連邦共和国 レニンゲン ホールヴ
エークエッカー 1
F クーム (参考) 4K018 AA26 AA30 AB10 BA14 BC01
BC09 BC28 CA08 CA12 DA21
DA33 FA08 KA43
5E041 AA01 AA02 AA05 HB05 NN18